

(12)特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19)世界知的所有権機関
国際事務局(43)国際公開日
2004年4月22日 (22.04.2004)

PCT

(10)国際公開番号
WO 2004/034490 A1

- (51) 国際特許分類7: H01M 4/50, 6/06, C25B 1/00
 (21) 国際出願番号: PCT/JP2003/002640
 (22) 国際出願日: 2003年3月6日 (06.03.2003)
 (25) 国際出願の言語: 日本語
 (26) 国際公開の言語: 日本語
 (30) 優先権データ:
 特願 2002-299301
 2002年10月11日 (11.10.2002) JP
 (71) 出願人(米国を除く全ての指定国について): 三井金属
鉱業株式会社 (MITSUI MINING & SMELTING CO., LTD.) [JP/JP]; 〒141-8584 東京都品川区大崎1丁目11番1号 Tokyo (JP).
 (72) 発明者;
 (75) 発明者/出願人(米国についてのみ): 山口宗利 (YAMAGUCHI,Munetoshi) [JP/JP]; 〒725-0025 広島県竹原市塩町1丁目5番1号 三井金属鉱業株式会社内 Hiroshima (JP).
 (74) 代理人: 竹内三郎, 外(TAKEUCHI,Saburo et al.); 〒105-0001 東京都港区虎ノ門2丁目6番4号 虎ノ門11森ビル2階 竹内国際特許事務所内 Tokyo (JP).
 (81) 指定国(国内): AU, CA, CN, KR, US, ZA.
 (84) 指定国(広域): ヨーロッパ特許 (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PT, RO, SE, SI, SK, TR).

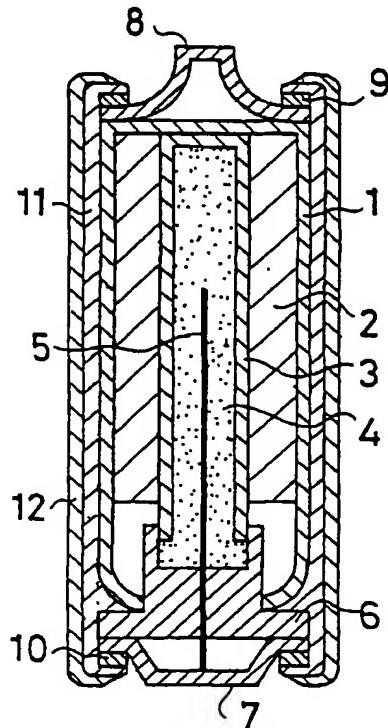
[統葉有]

(54) Title: POSITIVE PLATE ACTIVE MATERIAL FOR CELL, METHOD FOR PRODUCING ELECTROLYTIC MANGANESE DIOXIDE, AND CELL

(54)発明の名称: 電池用正極活性物質及び電解二酸化マンガンの製造方法並びに電池

(57) Abstract: A positive plate active material for a cell comprising electrolytic manganese dioxide and a cell comprising the positive plate active material. The measured amount of electrolytic manganese dioxide reduced when heated at 200 to 400°C is 2.7 weight% or greater. The reduction of the weight in this temperature range is proportional to the amount of bound water in the electrolytic manganese dioxide.

(57) 要約: 電解二酸化マンガンからなる電池用正極活性物質及びその正極活性物質を用いた電池であり、その電解二酸化マンガンは、それを加熱してその重量減少を測定した際、200~400°Cでの重量減少が2.7重量%以上となるものである。この温度範囲での重量減少量は、電解二酸化マンガン内部の結合水量に比例する。



BEST AVAILABLE COPY

明細書

電池用正極活物質及び電解二酸化マンガンの製造方法並びに電池

技術分野

本発明は、電解二酸化マンガンからなる電池用正極活物質及び電解二酸化マンガンの製造方法並びにその正極活物質を用いた電池に関する。

背景技術

従来から電池用正極活物質の代表的な物質として二酸化マンガンが知られ、マンガン電池、アルカリマンガン電池などに使用されている。

このような電池用正極活物質として用いる二酸化マンガンを得る方法としては、硫酸マンガン及び硫酸溶液を電解液として電解する方法が知られている。しかしながら、このような電解二酸化マンガンは、電池の正極活物質に用いた場合、充分な特性を有する電池が得られないため様々な改良がなされている。

例えば、硫酸マンガン及び硫酸溶液にリン酸水溶液を添加した電解液を電解して、従来の電解二酸化マンガンと比較して高比表面積を有する電解二酸化マンガンを得る方法が開発されている（特開平2-57693号公報参照）。

また、二酸化マンガンを硫酸溶液で洗浄して二酸化マンガンの電位を上げる試みがなされている。

電池の正極活物質として用いる二酸化マンガンは、反応面積が大きく、かつ電位が高い方がよいとされており、電池の高性能化に伴い従来のものよりさらに高い比表面積、電位を有することが必要とされている。また、マンガン電池、アルカリマンガン電池等にはハイレート特性、ハイレートパルス特性の改善が求められている。

本発明の電池用正極活物質は、電解法により製造された電解二酸化マンガンであって、電解により製造された時点で水分を含有するものである。この水分は、かかる電池用正極活物質製造後に事後的に水分を添加したものとは異なり、二酸化マンガンの内部に水分が結合水として含有されるものである。この結合水は加熱することにより蒸発するが、特に200～400℃において蒸発する水分が電池特性と関連のあることを見出し、本発明に到った。

結合水が多いということは、電解二酸化マンガンの内部欠陥が多いということになり、水素イオンの拡散を容易にし、電池特性の向上に寄与しているものと推測されるが、特に200～400℃において蒸発する水分が水素イオンの拡散に効果があるものと推測される。

本発明の電解二酸化マンガンは、当該電解二酸化マンガンを加熱した際、即ち試料としての電解二酸化マンガンを加熱して温度を上げていった時の重量変化を測定する試験に供した際、200～400℃での重量減少が2.7重量%以上、特に3重量%以上であることが好ましい。

200～400℃範囲での重量減少が2.7重量%以上、特に3重量%以上であれば、電解二酸化マンガンの電池特性を顕著に向上させることができる。

なお、電解二酸化マンガンを加熱した際の200～400℃での重量減少量は、二酸化マンガン内部に含まれる結合水の量に比例するため、上記のこととは、内部に結合水を含有する電解二酸化マンガンにおいて、電解二酸化マンガンを加熱した際、200～400℃の範囲での電解二酸化マンガンの重量減少量が2.7重量%以上、特に3重量%以上となる量の結合水を電解二酸化マンガンが含有するのが好ましいと言い換えることができる。

本発明の電解二酸化マンガンの比表面積は、75m²/g以下、好ま

また、電解電流密度は、 $20 \sim 50 \text{ A/m}^2$ 、特に $20 \sim 35 \text{ A/m}^2$ であるのが好ましい。電解電流密度が 20 A/m^2 以上であれば、比表面積が低くなり過ぎることがなく、電池用正極活物質として用いた時、ハイレート特性を顕著に向上させることができる。又、 50 A/m^2 以下であれば電解二酸化マンガンの水分重量減少が低下することなく、電位の低下を抑え、電池特性を好適に維持することができる。

さらに、電解液の硫酸濃度は $50 \sim 100 \text{ g/L}$ 、特に $75 \sim 100 \text{ g/L}$ であることが好ましい。硫酸濃度が $50 \sim 100 \text{ g/L}$ の範囲内であれば電池特性を好適に維持することができる。

他の電解の条件については、従来から知られている硫酸マンガン及び硫酸溶液からなる電解液を電解して電解二酸化マンガンを得る方法を適用すればよい。例えば、電解液中のマンガン濃度は $20 \sim 50 \text{ g/L}$ が一般的である。また、電極として陽極にはチタン等、陰極にはカーボン等を用いることができる。

このようにして得た本発明の電解二酸化マンガンが、当該電解二酸化マンガンを加熱した際の、 $200 \sim 400^\circ\text{C}$ での重量減少が、2.7重量%以上、特に好ましくは3重量%以上であって、電位が $270 \sim 320 \text{ mV}$ と高く、さらに比表面積が $35 \sim 65 \text{ m}^2/\text{g}$ と高ければ、高性能な電池用正極活物質となる。

上述の電解二酸化マンガンからなる正極活物質は、マンガン電池、アルカリマンガン電池等の正極活物質として好適に用いることができる。

電池の負極活物質は従来から知られているものでよく、特に限定されないがマンガン電池、アルカリマンガン電池の場合は亜鉛等を用いるのが好ましい。

電池を構成する電解液も従来から知られているものでよく、特に限定されないが、マンガン電池では塩化亜鉛又は塩化アンモニウム、アルカリマンガン電池では水酸化カリウム等を用いるのが好ましい。

次に、以上の点を総合して、本発明の態様について説明する。

本発明の第1の態様は、電解二酸化マンガンからなる電池用正極活物質において、当該電解二酸化マンガンを加熱した際の200～400℃での重量減少が2.7重量%以上、好ましくは3重量%以上であることを特徴とする電池用正極活物質にある。

ここで、電解二酸化マンガンを加熱した際の200～400℃での重量減少量は、二酸化マンガン内部に含まれる結合水量に比例するため、上記第1の態様は、二酸化マンガンの内部に結合水を含有する電解二酸化マンガンからなる電池用正極活物質において、前記電解二酸化マンガンを加熱した際、200～400℃での重量減少が2.7重量%以上、好ましくは3重量%以上となる量の結合水を含有する電解二酸化マンガンからなる電池用正極活物質と言うことができる。

本発明者は、電解二酸化マンガンを加熱した際に重量が減少する量、その中でも特に、加熱した際に200～400℃で減少する減少重量が、電池特性と密接に関連することを今回新たに見出した。電解二酸化マンガンを加熱した際に重量が減少する主要な部分は、二酸化マンガン中に含まれる水分（結合水）の蒸発分であるから、第1の態様の電池用正極活物質は、電池特性と密接に関連する水分、即ち200～400℃の加熱範囲で蒸発する水分を多量に含有しているために、高性能の電池用正極活物質を提供することができると言える。

本発明の第2の態様は、第1の態様において、前記電解二酸化マンガンの比表面積が $75\text{ m}^2/\text{g}$ 以下であることを特徴とする電池用正極活物質にある。

かかる第2の態様では、第1の態様において電解二酸化マンガンの比表面積が $75\text{ m}^2/\text{g}$ 以下であるから、実用上好ましいローレート特性、ハイレート特性及びパルス特性を示し、電池に用いた場合、電池の高性能化をバランス良く図ることができる。

本発明の第3の態様は、第1又は2の態様において、前記電解二酸

本発明の第7の態様は、第5または6の態様において、前記電解二酸化マンガンの比表面積が $75\text{ m}^2/\text{g}$ 以下であることを特徴とする電解二酸化マンガンの製造方法にある。

かかる第7の態様では、第5または6の態様において、電解二酸化マンガンの比表面積が $75\text{ m}^2/\text{g}$ 以下であるから、実用上好ましいロー・レート特性、ハイレート特性及びパルス特性を示し、電池に用いた場合、電池の高性能化をバランス良く図ることができる。

本発明の第8の態様は、第5～7の何れかの態様において、前記電解二酸化マンガンの電位が $270\sim320\text{ mV}$ であることを特徴とする電解二酸化マンガンの製造方法にある。

かかる第8の態様では、電解二酸化マンガンの電位が 270 mV 以上 320 mV 以下と高いので、電池に用いると電池の高性能化を図ることができる。

本発明の第9の態様は、第1～4の何れかの態様の電池用正極活物質を用いたことを特徴とする電池にある。

かかる第9の態様では、前記電解二酸化マンガンを加熱した際の、 $200\sim400^\circ\text{C}$ での重量減少が 2.7 重量 \% 以上、好ましくは 3 重量 \% 以上である電池用正極活物質を用いるので、優れたハイレート特性やハイレートパルス特性等を有する電池を提供することができる。

(実施例1)

加温装置を設けた5Lビーカーを電解槽とし、陽極としてチタン板を、陰極として黒鉛板をそれぞれ交互に懸吊し、電解槽の底部に硫酸マンガンからなる電解補強液の導入管を設けたものを使用した。この電解補給液を前記電解槽に注入しながら、電解するに際して電解液の組成がマンガン 40 g/L 、硫酸濃度 75 g/L となるように調整し、電解浴の温度を 90°C に保ち電流密度 35 A/m^2 で20日間電解した。

(実施例 1 0)

電流密度を $15\text{ A}/\text{m}^2$ と低くした以外は実施例 1 と同様に行って、実施例 1 0 の電解二酸化マンガンを得た。

(実施例 1 1)

電流密度を $20\text{ A}/\text{m}^2$ と低くし、電解液の硫酸濃度を $50\text{ g}/\text{L}$ と低くした以外は実施例 1 と同様に行って、実施例 1 1 の電解二酸化マンガンを得た。

(実施例 1 2)

電流密度を $15\text{ A}/\text{m}^2$ と低くし、電解液の硫酸濃度を $50\text{ g}/\text{L}$ と低くした以外は実施例 1 と同様に行って、実施例 1 2 の電解二酸化マンガンを得た。

(実施例 1 3)

電流密度を $15\text{ A}/\text{m}^2$ と低くし、電解液の硫酸濃度を $65\text{ g}/\text{L}$ と低くした以外は実施例 1 と同様に行って、実施例 1 3 の電解二酸化マンガンを得た。

(比較例 1)

電流密度を $55\text{ A}/\text{m}^2$ と高くした以外は実施例 1 と同様に行って、比較例 1 の電解二酸化マンガンを得た。

(比較例 2)

電解液の硫酸濃度を $45\text{ g}/\text{L}$ と低くした以外は実施例 1 と同様に行って、比較例 2 の電解二酸化マンガンを得た。

(比較例 3)

電解液の硫酸濃度を $105\text{ g}/\text{L}$ と高くした以外は実施例 1 と同様に行って、比較例 3 の電解二酸化マンガンを得た。

[試験 1]

実施例 1 ~ 1 3 及び比較例 1 ~ 3 で得られた電解二酸化マンガンを

実施例9A	98	35	75	3.01	315	20
実施例10A	90	15	75	3.05	320	35
実施例11A	90	20	50	2.72	273	45
実施例12A	90	15	50	2.86	278	45
実施例13A	90	15	65	2.95	295	40
比較例1A	90	55	75	2.68	265	65
比較例2A	90	35	45	2.59	265	55
比較例3A	90	35	105	2.59	250	55

表1に示すように、実施例1～10の電解二酸化マンガンは、電解二酸化マンガンを加熱した際の200～400℃での重量減少が3.0重量%以上であり、270～320mVと高電位であった。

また、実施例11～13の電解二酸化マンガンを含めると、電解二酸化マンガンを加熱した際の200～400℃での重量減少が2.7重量%以上であり、270～320mVと高電位であった。

実施例1～7及び実施例11～13の電解二酸化マンガンは、さらに、比表面積が40～65m²/gであった。

また、実施例1～7及び実施例11の結果から、電解温度85～95℃、電流密度20～50A/m²、硫酸濃度50～100g/Lの電解条件で製造すれば、電解二酸化マンガンを加熱した際の、200～400℃での重量減少が2.7重量%以上、電位が270～320mV、比表面積が40～65m²/gの電解二酸化マンガンを得られることがわかった。

(実施例1A～13A)

実施例1～13の電解二酸化マンガンを正極活物質としてLR6(単3)型のアルカリマンガン電池を作製した。ここで、電池の電解

[試験 3]

実施例 1 A～1 3 A 及び比較例 1 A～3 A のアルカリマンガン電池について、20°C、放電電流 1 000 mA（ハイレート）で放電を行い、カット電圧（終止電圧）0.9 Vまでの放電時間（単位：min）を測定した。

実施例 9 A の値（単位：min）を 100% としてハイレート特性を評価した。

[試験 4]

実施例 1 A～1 3 A 及び比較例 1 A～3 A のアルカリマンガン電池について、20°C、放電電流 1 000 mA（ハイレート）で 10 秒 ON、50 秒 OFF のパルス繰り返し放電を行い、カット電圧（終止電圧）0.9 Vまでのパルス回数を測定した（パルス特性 1）。

また、実施例 1 A～1 3 A 及び比較例 1 A～3 A のアルカリマンガン電池について、20°C、放電電流 1 500 mA（ハイレート）で 10 秒 ON、50 秒 OFF のパルス繰り返し放電を行い、カット電圧（終止電圧）0.9 Vまでのパルス回数を測定した（パルス特性 2）。

実施例 9 A の値を 100% としてハイレートパルス特性を評価した。

試験 2～4 の測定結果を表 2 に示す。なお、表 1 に記載の電解ニ酸化マンガンを加熱した際の、200～400°Cでの重量減少量、及び比表面積についても併せて記載した。

(表 2)

	アルカリマンガン電池特性				
	電解ニ酸化マンガンの物性		ローレート	ハイレート	パルス
	重量減少 (%)	比表面積 (m ² /g)	特性	特性	特性 1
			(%)	(%)	(%)

実施例 1 A～7 A 及び 10 A は、特に負荷の高いハイレートパルス特性（パルス特性 2）が良好であった。

中でも特に、電解二酸化マンガンを加熱した際の 200～400 °C での重量減少が 3 重量% 以上であり、電解二酸化マンガンの比表面積が 40～65 m²/g である実施例 1 A～7 A は、優れたハイレート特性及びハイレートパルス特性を示し、上記範囲外である実施例 8 A～13 A と比較しても良好であった。

表 1 及び表 2 に示すように、電解温度 85～95 °C で電解した実施例 1 A～3 A は、98 °C で電解した実施例 9 A と比較して、アルカリマンガン電池のハイレート特性は 5～10 %、ハイレートパルス特性は 10～20 % 向上した。なお、80 °C で電解した実施例 8 A では、実施例 1 A～3 A 及び実施例 9 A と比較してローレート特性が著しく低下した。

また、電流密度 20～50 A/m² で電解した実施例 1 A、4 A 及び 5 A は、15 A/m² で電解した実施例 10 A と比較してハイレートパルス特性が 10～18 % 向上した。なお、55 A/m² で電解した比較例 1 A は、実施例 1 A、4 A、5 A 及び 10 A と比較して、すべての電池特性で同等以下であった。

さらに、硫酸濃度 50～100 g/L で電解した実施例 1 A、6 A 及び 7 A は、45 g/L で電解した比較例 2 A と比較してハイレートパルス特性が 15 % 向上した。なお、105 g/L で電解した比較例 3 A は、実施例 1 A、6 A 及び 7 A、比較例 2 A と比較して、すべての電池特性が劣っていた。

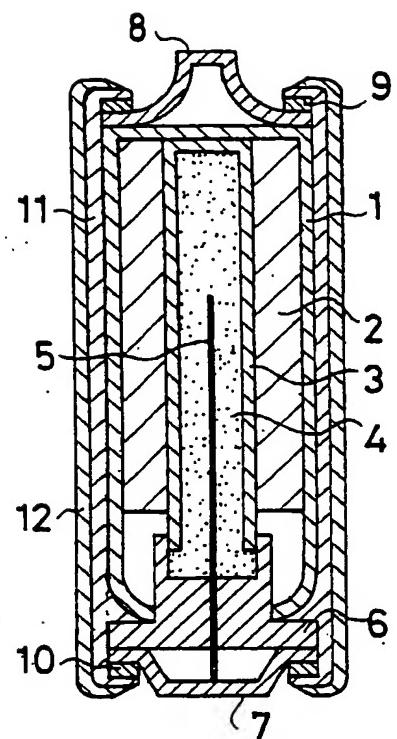
したがって、実施例 1 A～7 A のように、電解温度 85～95 °C、電流密度 20～50 A/m²、硫酸濃度 50～100 g/L の電解条件で製造して得た電解二酸化マンガン、即ち電解二酸化マンガンを加熱した際の、200～400 °C での重量減少が 2.7 重量% 以上、好ましくは 3.0 重量% 以上で、電位が 270～320 mV で、比表面積

請求の範囲

1. 電解二酸化マンガンからなる電池用正極活物質において、前記電解二酸化マンガンは、当該電解二酸化マンガンを加熱した際の200～400℃での重量減少が2.7重量%以上であることを特徴とする電池用正極活物質。
2. 前記電解二酸化マンガンの比表面積が $75\text{ m}^2/\text{g}$ 以下であることを特徴とする請求項1記載の電池用正極活物質。
3. 前記電解二酸化マンガンの電位が270～320mVであることを特徴とする請求項1又は2に記載の電池用正極活物質。
4. 前記電解二酸化マンガンは、硫酸マンガン及び硫酸溶液を電解液として、85～95℃の電解温度、20～50A/ m^2 の電解電流密度、50～100g/Lの硫酸濃度で電解して得たものであることを特徴とする請求項1～3のいずれかに記載の電池用正極活物質。
5. 硫酸マンガンおよび硫酸溶液を電解液として電解を行い、電解二酸化マンガンを製造する方法において、85～95℃の電解温度、20～50A/ m^2 の電解電流密度、50～100g/Lの硫酸濃度で電解することを特徴とする電解二酸化マンガンの製造方法。
6. 得られた電解二酸化マンガンは、当該電解二酸化マンガンを加熱した際の200～400℃での重量減少が2.7重量%以上であることを特徴とする請求項5に記載の電解二酸化マンガンの製造方法。
7. 得られた電解二酸化マンガンの比表面積が $75\text{ m}^2/\text{g}$ 以下であることを特徴とする請求項5又は6に記載の電解二酸化マンガンの製造方法。
8. 得られた電解二酸化マンガンの電位が270～320mVであることを特徴とする請求項5～7のいずれかに記載の電解二酸化マンガンの製造方法。

1 / 1

【図 1】



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP03/02640

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 10-228899 A (FDK Corp.), 25 August, 1998 (25.08.98), Par. No. [0026] (Family: none)	2
Y	JP 7-183032 A (Tosoh Corp.), 21 July, 1995 (21.07.95), Industrial Field of Invention; Par. No. [0014] (Family: none)	3

国際調査報告

国際出願番号 PCT/JP03/02640

A. 発明の属する分野の分類(国際特許分類(IPC))

Int. Cl' H01M 4/50 H01M 6/06 C25B 1/00

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料(国際特許分類(IPC))

Int. Cl' H01M 4/50 H01M 6/06 C25B 1/00

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1926-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2003年
日本国登録実用新案公報	1994-2003年
日本国実用新案登録公報	1996-2003年

国際調査で使用した電子データベース(データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	JP 2002-289185 A (東ソー株式会社)	1-9
Y	2002. 10. 04, 【特許請求の範囲】、【発明の属する技術分野】、段落番号【0053】～【0055】(ファミリーなし)	4
X	JP 9-188519 A (三井金属鉱業株式会社)	1, 9
Y	1997. 07. 22, 【特許請求の範囲】、段落番号【0019】 &EP 782972 A2 (MITSUI MINING &SMELTING CO., LTD.)	2-4

 C欄の続きにも文献が列挙されている。 パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献(理由を付す)
 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
 「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

08.05.03

国際調査報告の発送日

20.05.03

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号 100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官(権限のある職員)

青木千歌子

印 4 X 9351

電話番号 03-3581-1101 内線 3477

第I欄 請求の範囲の一部の調査ができないときの意見（第1ページの2の続き）

法第8条第3項（PCT17条(2)(a)）の規定により、この国際調査報告は次の理由により請求の範囲の一部について作成しなかった。

1. 請求の範囲 _____ は、この国際調査機関が調査をすることを要しない対象に係るものである。つまり、

2. 請求の範囲 _____ は、有意義な国際調査をすることができる程度まで所定の要件を満たしていない国際出願の部分に係るものである。つまり、

3. 請求の範囲 _____ は、従属請求の範囲であってPCT規則6.4(a)の第2文及び第3文の規定に従って記載されていない。

第II欄 発明の単一性が欠如しているときの意見（第1ページの3の続き）

次に述べるようにこの国際出願に二以上の発明があるとこの国際調査機関は認めた。

請求の範囲1は「200～400°Cでの重量減少が2.7重量%以上であることを特徴とする電池用正極活物質」に係る発明であるのに対し、請求の範囲5は単なる「電解二酸化マングンの製造方法」に係る発明であって、その用途及び重量減少が規定されないものであるから、請求の範囲5が請求の範囲1の製造方法の発明であると言うことはできない。

よって、この国際出願の請求の範囲には、請求の範囲1～4と9、5～8に区分される2つの発明が記載されていると認める。

1. 出願人が必要な追加調査手数料をすべて期間内に納付したので、この国際調査報告は、すべての調査可能な請求の範囲について作成した。
2. 追加調査手数料を要求するまでもなく、すべての調査可能な請求の範囲について調査することができたので、追加調査手数料の納付を求めなかった。
3. 出願人が必要な追加調査手数料を一部のみしか期間内に納付しなかったので、この国際調査報告は、手数料の納付のあった次の請求の範囲のみについて作成した。
4. 出願人が必要な追加調査手数料を期間内に納付しなかったので、この国際調査報告は、請求の範囲の最初に記載されている発明に係る次の請求の範囲について作成した。

追加調査手数料の異議の申立てに関する注意

- 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがあった。
 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがなかった。

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- BLACK BORDERS**
- IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- FADED TEXT OR DRAWING**
- BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- SKEWED/SLANTED IMAGES**
- COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- GRAY SCALE DOCUMENTS**
- LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- OTHER:** _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.